



VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS



PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000053708	WEITERES VORGEHEN siehe Formblatt PCT/IPEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2004/009884	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 04.09.2004	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 10.09.2003
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C209/48, C07C211/27		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.		
<p>1. Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 6 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p>3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) insgesamt 2 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (nur an das Internationale Büro gesandt) insgesamt (bitte Art und Anzahl der/des elektronischen Datenträger(s) angeben), der/die ein Sequenzprotokoll und/oder die dazugehörigen Tabellen enthält/enhalten, nur in computerlesbarer Form, wie im Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll angegeben (siehe Abschnitt 802 der Verwaltungsvorschriften).</p>		
<p>4. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. I Grundlage des Bescheids</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. II Priorität</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>		
Datum der Einreichung des Antrags 08.07.2005	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 10.11.2005	
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Kiernan, A Tel. +49 89 2399-8033 	

Feld Nr. I Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bericht auf der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.
- ☐ Der Bericht beruht auf einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
- ☐ internationale Recherche (nach Regeln 12.3 und 23.1 b))
 - ☐ Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4)
 - ☐ internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 und/oder 55.3)
2. Hinsichtlich der **Bestandteile*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt*):

Beschreibung, Seiten

1-13 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-14 eingegangen am 09.07.2005 mit Schreiben vom 08.07.2005

Zeichnungen, Blätter

1/3-3/3 in der ursprünglich eingereichten Fassung

☐ einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll

3. ☐ Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung: Seite
- ☐ Ansprüche: Nr.
- ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
- ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
- ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

4. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigelegten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).

- ☐ Beschreibung: Seite
- ☐ Ansprüche: Nr.
- ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
- ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
- ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT
ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT**

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2004/009884

Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung
- | | |
|--------------------------------|---------------------|
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche 1-14 |
| | Nein: Ansprüche |
| Erfinderische Tätigkeit (IS) | Ja: Ansprüche 1-14 |
| | Nein: Ansprüche |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-14 |
| | Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):

siehe Beiblatt

Zu Punkt V

Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

D1: EP-A-1 193 244

D2: EP-A-1 279 661

Die vorliegende Anmeldung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Xylylendiamin durch Ammonoxidation von Xylol zu Phthalodinitril, Quenchen des gasförmigen Produktgemisches mit einem Lösungsmittel oder mit geschmolzenem Phthalodinitril, teilweise oder vollständige Abtrennung der Leichtsieder und Hydrierung des Phthalodinitrils.

Neuheit

D1 und D2 offenbaren ebenfalls ein Verfahren zur Herstellung von Xylylendiamin durch Ammonoxidation von Xylol, Quenchen des gasförmigen Produktgemisches und Hydrierung der entstandenen Phthalodinitrils.

In D1 werden weder die Leichtsieder noch die Hochsieder vor der Hydrierung abgetrennt; die Quenchlösung bzw. -suspension wird direkt der Hydrierung unterworfen.

In D2 werden vor der Hydrierung zuerst die Hochsieder und danach die Leichtsieder von dem Phthalodinitril destillativ abgetrennt.

Das vorliegende Verfahren unterscheidet sich vom Stand der Technik dadurch, daß vor der Hydrierung lediglich die Leichtsieder, nicht aber die Hochsieder von dem Phthalodinitril enthaltenden Quench abgetrennt werden. Zudem wird die Hydrierung des Phthalodinitrils in Abwesenheit eines organischen Lösungsmittels durchgeführt. Der Gegenstand der Ansprüche 1-15 scheint daher neu zu sein.

Erfinderische Tätigkeit

D1 und D2 offenbaren ebenfalls ein Verfahren zur Herstellung von Xylylendiamin durch Ammonoxidation von Xylol, Quenchen des gasförmigen Produktgemisches und Hydrierung der entstandenen Phthalodinitrils.

Laut Beschreibung (siehe Seite 2, Zeilen 17-23) bestand die zu lösende Aufgabe darin, ein verbessertes wirtschaftliches Verfahren zur Herstellung von hoch reinem Xylylendiamin mit hoher Ausbeute und Raum-Zeit-Ausbeute bereitzustellen, welches aufgrund verringerter Stoffströme, insbesondere Lösungsmittelströme, die Verwendung von verkleinerten und/oder weniger Apparaten ermöglicht.

Der Stand der Technik lehrt, daß die Hydrierung sowohl ganz ohne vorherige Abtrennung der Hoch- und Leichtsieder (D1) als auch nach Abtrennung von Hochsiedern und Leichtsiedern (D2) durchgeführt werden kann.

Das Verfahren gemäß vorliegendem Anspruch 1 unterscheidet sich von den Verfahren aus dem Stand der Technik darin, daß vor der Hydrierung die Leichtsieder, nicht aber die Hochsieder von dem Phthalodinitril enthaltenden Quench abgetrennt werden. Zudem wird die Hydrierung in Abwesenheit eines organischen Lösungsmittels durchgeführt. Die gestellte Aufgabe, die Lösungsmittelströme zu verringern, kann damit als gelöst betrachtet werden.

Weder D1 noch D2 kann das erfindungsgemäße Verfahren nahelegen, da in D1 kein Lösungsmittel abgetrennt wird vor der Hydrierung; in dem in D2 beschriebenen Verfahren werden zwar sowohl Leichtsieder als auch Hochsieder abgetrennt, jedoch wird zur Hydrierung wieder organisches Lösungsmittel zugesetzt (siehe D2, Anspruch 1 und Beispiele), so dass hier keine Verringerung der Stoffströme gegeben ist.

Der Gegenstand der Ansprüche 1-14 kann daher als erfinderisch angesehen werden.

Industrielle Anwendbarkeit

Gegen die industrielle Anwendbarkeit bestehen keine Bedenken.

Sonstige Bemerkungen:

1. In vorliegendem Beispiel 1 wird vor der Hydrierung noch weiteres Lösungsmittel (N-Methyl-2-pyrrolidon) zugegeben. Gemäß dem geänderten Anspruch 1 wird die Hydrierung jedoch in Abwesenheit eines organischen Lösungsmittels durchgeführt. Dieses Beispiel macht den Gegenstand der Ansprüche daher unklar (Artikel 6 PCT).
2. In Abbildung 1 ist eine Hochsiederabtrennung als ein Teilschritt dargestellt. Dies steht jedoch im Widerspruch mit Anspruch 1, nach welchem keine Hochsiederabtrennung vor der Hydrierung stattfinden soll (Artikel 6 PCT).
3. Die Beschreibung steht nicht, wie in Regel 5.1 a) iii) PCT vorgeschrieben, in Einklang mit den Ansprüchen.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von ortho-, meta- oder para-Xylylendiamin umfassend die Schritte
5 Ammonoxidation von ortho-, meta- oder para-Xylol zu o-Phthalodinitril, Iso- oder Terephthalodinitril und Hydrierung des Phthalodinitrils, dadurch gekennzeichnet, dass das dampfförmige Produkt der Ammonoxidationsstufe direkt mit einem flüssigen organischen Lösungsmittel, welches einen niedrigen Siedepunkt als das Phthalodinitril hat, oder mit geschmolzenem Phthalodinitril in Kontakt gebracht wird (Quench),
10 aus der erhaltenen Quenchlösung oder -suspension bzw. Phthalodinitrilschmelze Komponenten mit einem Siedepunkt niedriger als Phthalodinitril (Leichtsieder) abgetrennt werden, vor der Hydrierung des Phthalodinitrils keine Produkte mit einem Siedepunkt höher als Phthalodinitril (Hochsieder) abgetrennt werden und
15 die Hydrierung in Abwesenheit eines organischen Lösungsmittels durchgeführt wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1 zur Herstellung von meta-Xylylendiamin umfassend die Schritte Ammonoxidation von meta-Xylol zu Isophthalodinitril und Hydrierung des Isophthalodinitrils.
20
3. Verfahren nach den Ansprüchen 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass als flüssiges organisches Lösungsmittel für den Quench ein aromatischer Kohlenwasserstoff, eine heterocyclische Verbindung, ein aromatisches Nitril und/oder ein heterocyclisches Nitril eingesetzt wird.
25
4. Verfahren nach den Ansprüchen 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass als flüssiges organisches Lösungsmittel für den Quench Tolunitril, Benzonitril und/oder N-Methyl-2-pyrrolidon (NMP) eingesetzt wird.
30
5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass bei dem Quench mit einem flüssigen organischen Lösungsmittel die Temperatur des Quenchaustrags 40 bis 180°C und bei dem Quench mit geschmolzenem Phthalodinitril die Temperatur des Quenchaustrags 165 bis 220°C beträgt.
35
6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die teilweise oder vollständige Abtrennung der Leichtsieder aus der erhaltenen Quenchlösung oder -suspension bzw. Phthalodinitrilschmelze destillativ über Kopf erfolgt, während Phthalodinitril zusammen mit Produkten mit einem Siedepunkt höher als Phthalodinitril (Hochsieder) über Sumpf abgetrennt werden.
40

7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass der Quench des dampfförmigen Produkts der Ammonoxidationsstufe so in einer Kolonne durchgeführt wird, dass Reaktionsgase und Leichtsieder teilweise oder vollständig über Kopf und Phthalodinitril zusammen mit Produkten mit einem Siedepunkt höher als Phthalodinitril (Hochsieder) über Sumpf abgetrennt werden.
8. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Ammonoxidation bei Temperaturen von 300 bis 500°C an einem Katalysator enthaltend V, Sb und/oder Cr, als Vollkatalysator oder auf einem inerten Träger, durchgeführt wird.
9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Hydrierung in Gegenwart von Ammoniak durchgeführt wird.
10. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Hydrierung bei Temperaturen von 40 bis 150°C an einem Katalysator enthaltend Ni, Co und/oder Fe, als Vollkatalysator oder auf einem inerten Träger, durchgeführt wird.
11. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass nach der Hydrierung eine Reinigung des Xylylendiamins durch Abdestillation des gegebenenfalls eingesetzten Lösungsmittels und Ammoniaks sowie gegebenenfalls leichtersiedender Nebenprodukte über Kopf und destillativer Abtrennung von schwerersiedenden Verunreinigungen über Sumpf erfolgt.
12. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass man nach der Hydrierung das gegebenenfalls eingesetzte Lösungsmittel und Ammoniak sowie gegebenenfalls leichtersiedende Nebenprodukte über Kopf abdestilliert und danach schwerersiedende Verunreinigungen vom Xylylendiamin destillativ über Sumpf abtrennt.
13. Verfahren nach einem der beiden vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das Xylylendiamin nach der Destillation zur weiteren Reinigung mit einem organischem Lösungsmittel extrahiert wird.
14. Verfahren nach dem vorhergehenden Anspruch, dadurch gekennzeichnet, dass man zur Extraktion Cyclohexan oder Methylcyclohexan verwendet.